

PCT

27 JAN 2005

WIPO

PCT

特許性に関する国際予備報告（特許協力条約第二章）

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]

Rec'd PCT/PTO 14 APR 2005

| | | |
|--|------------------------------------|---------------------------|
| 出願人又は代理人 の書類記号 YCT-761 | 今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。 | |
| 国際出願番号 PCT/JP03/02343 | 国際出願日 (日.月.年) 28.02.2003 | 優先日 (日.月.年) 16.10.2002 |
| 国際特許分類 (IPC) Int. Cl ⁷ C08L79/08, C08G73/10, C08G73/22 | | |
| 出願人 (氏名又は名称) 株式会社ピーアイ技術研究所 | | |

1. この報告書は、PCT35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。
法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。

3. この報告には次の附属物件も添付されている。

a ☒ 附属書類は全部で 5 ページである。

☒ 補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面の用紙 (PCT規則70.16及び実施細則第607号参照)

☐ 第I欄4. 及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙

b ☐ 電子媒体は全部で (電子媒体の種類、数を示す)。
配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。 (実施細則第802号参照)

4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

☒ 第I欄 国際予備審査報告の基礎

☐ 第II欄 優先権

☐ 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成

☐ 第IV欄 発明の単一性の欠如

☒ 第V欄 PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明

☐ 第VI欄 ある種の引用文献

☐ 第VII欄 国際出願の不備

☐ 第VIII欄 国際出願に対する意見

| | | |
|--|------------------------------|----------|
| 国際予備審査の請求書を受理した日 17.05.2004 | 国際予備審査報告を作成した日 06.01.2005 | |
| 名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 | 特許庁審査官 (権限のある職員) 富士 良宏 | 4 J 8830 |
| 電話番号 03-3581-1101 内線 6829 | | |

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (2004年1月)

BEST AVAILABLE COPY

第I欄 報告の基礎

1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎とした。

☐ この報告は、_____ 語による翻訳文を基礎とした。
それは、次の目的で提出された翻訳文の言語である。

- ☐ PCT規則12.3及び23.1(b)にいう国際調査
☐ PCT規則12.4にいう国際公開
☐ PCT規則55.2又は55.3にいう国際予備審査

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1-20 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
第 _____ ページ*、 _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの
第 _____ ページ*、 _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 5-10, 13, 16-23 _____ 項、 出願時に提出されたもの
第 _____ 項*、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの
第 1-4, 14-15 _____ 項*、 30.08.2004 付けで国際予備審査機関が受理したもの
第 11-12 _____ 項*、 17.05.2004 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 図面

第 _____ ページ/図、 出願時に提出されたもの
第 _____ ページ/図*、 _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの
第 _____ ページ/図*、 _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☐ 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 第 _____ ページ/図
☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____
☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 第 _____ ページ/図
☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____
☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

* 4. に該当する場合、その用紙に "superseded" と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)

請求の範囲 1-23

請求の範囲

有
無

進歩性(IS)

請求の範囲 1-23

請求の範囲

有
無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲 1-23

請求の範囲

有
無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

- 文献1: WO 01/34679 A (株式会社ピーアイ技術研究所) 2001. 05. 17, 第4頁第7行目-第6頁第8行目, 第10頁第10行目-第12頁第2行目, 実施例, 請求の範囲
- 文献2: JP 6-172529 A (三菱化成株式会社) 1994. 06. 21, 全文
- 文献3: US 5502143 A (PI Material Research Laboratory) 1996. 03. 26, 全文

請求の範囲1-23に係る発明は、国際調査報告で引用されたいずれの文献にも記載されておらず、当業者にとって自明なものでもない。

上記文献1及び3には、テトラカルボン酸成分とジアミン成分との反応生成物であるオリゴマーに、その他の酸ジ無水物及び芳香族ジアミンとを、酸触媒の存在下に反応させて得られる極性溶媒への溶解性に優れたブロック共重合体ポリイミドの製造方法が記載されている。また、上記文献1及び3には、上記ブロック共重合体ポリイミドを極性溶媒に溶解させた組成物を電気電子材料などの用途に使用する点も記載されている。さらに、上記文献1には、その他の芳香族ジアミン成分として水酸基とアミノ基とを有するものを使用したブロック共重合体ポリイミド溶液組成物及びその製造方法についても記載されている。

しかしながら、上記文献1には、テトラカルボン酸成分とジアミン成分との反応生成物であるオリゴマーを製造するにあたり、テトラカルボン酸成分としてピロメリット酸、ジアミン成分としてジアミノトルエンとを使用する点については、記載も示唆もされていない。上記文献2などに記載の通り、ピロメリット酸は、剛直性、直線性などの点を考慮し、ポリイミドの製造に使用されるものであるが、溶解性などの点から、ポリイミド溶液として一般に使用されるものではない。本願発明は、特定のジアミンとの組み合わせ及び特定の製造プロセスの採用により、極性溶媒に溶解可能なピロメリット酸成分を含むポリイミドを提供するものであり、従来技術に比して格段の作用効果を奏しているものと言える。

請求の範囲

1. (補正後) (a) ピロメリット酸ジ無水物 (1 モル) 及び、ジアミノトルエン (1. 5 ～ 2 モル) の反応生成物である両末端ジアミンのオリゴマーに、ピロメリット酸ジ無水物以外の酸ジ無水物と芳香族ジアミンとを、酸触媒の存在下に反応させて得られる、ピロメリット酸ジ無水物を含む四成分以上のブロック共重合ポリイミド、ここで、全酸ジ無水物と全芳香族ジアミンのモル比は 1 : 1 ～ 0. 9 5 である、及び
- 10 (b) 炭化水素を含む極性溶媒、
- からなる、フィルム、感光性ポリイミド、フィルム絶縁ワニス、フォトレジスト、電着用ポリイミド、印刷用ワニス、封止剤又は接着剤として使用するブロック共重合ポリイミド組成物。
2. (補正後) (a) ピロメリット酸ジ無水物以外の酸ジ無水物 (2 モル) 及び、
- 15 芳香族ジアミン (1 ～ 1. 5 モル) の反応生成物である両末端酸ジ無水物のオリゴマーに、ピロメリット酸ジ無水物と芳香族ジアミンとを、酸触媒の存在下に反応させて得られる、ピロメリット酸ジ無水物を含む四成分以上のブロック共重合ポリイミド、ここで、ピロメリット酸ジ無水物と芳香族ジアミンのモル比は 1 : 1. 5 ～ 2 であり、全酸ジ無水物と全芳香族ジアミンのモル比は 1 : 1 ～ 0. 9
- 20 5 である、及び
- (b) 炭化水素を含む極性溶媒、
- からなる、フィルム、感光性ポリイミド、フィルム絶縁ワニス、フォトレジスト、電着用ポリイミド、印刷用ワニス、封止剤又は接着剤として使用するブロック共重合ポリイミド組成物。
- 25 3. (補正後) (a) ピロメリット酸ジ無水物 (1 モル) 及び、ジアミノトルエン (1. 5 ～ 2 モル) と反応生成物である両末端ジアミンのオリゴマーに、ピロメリット酸ジ無水物以外の酸ジ無水物とオルト位に水酸基とアミノ基を有する芳香族ジアミンとを、酸触媒の存在下に反応させて得られる、ピロメリット酸ジ無水物を含む四成分以上のピロメリット酸ジ無水物を含む、ベンゾオキサゾール基

とイミド基を有する重縮合物、ここで、全酸ジ無水物と全芳香族ジアミンのモル比は1 : 1 ~ 0. 95である、及び

(b) 炭化水素を含む極性溶媒、

からなる、フィルム、感光性ポリイミド、フィルム絶縁ワニス、フォトレジスト、電着用ポリイミド、印刷用ワニス、封止剤又は接着剤として使用するピロメリット酸ジ無水物を含む、ベンゾオキサゾール基とイミド基を有する重縮合物組成物。

4. (補正後) (a) ピロメリット酸ジ無水物以外の酸ジ無水物 (2 モル) 及び、オルト位に水酸基とアミノ基を有する芳香族ジアミン (1 ~ 1. 5 モル) の反応生成物である両末端酸ジ無水物のオリゴマーに、ピロメリット酸ジ無水物と芳香族ジアミンとを、酸触媒の存在下に反応させて得られる、ピロメリット酸ジ無水物を含む、四成分以上の、ベンゾオキサゾール基とイミド基を有する重縮合物、ここで、ピロメリット酸ジ無水物と芳香族ジアミンのモル比は1 : 1. 5 ~ 2 であり、全酸ジ無水物と全芳香族ジアミンのモル比は1 : 1 ~ 0. 95である、及び

(b) 炭化水素を含む極性溶媒、

からなる、フィルム、感光性ポリイミド、フィルム絶縁ワニス、フォトレジスト、電着用ポリイミド、印刷用ワニス、封止剤又は接着剤として使用する、ピロメリット酸ジ無水物を含む、四成分以上の、ベンゾオキサゾール基とイミド基を有する重縮合物組成物。

5. ピロメリット酸ジ無水物を含む四成分以上のブロック共重合ポリイミド溶液の製造法において、

(a) ピロメリット酸ジ無水物 (1 モル) 及び、ジアミノトルエン (1. 5 ~ 2 モル) とを炭化水素を含む極性溶媒中で、160 ~ 200℃、酸触媒の存在下で反応させ、両末端ジアミンのオリゴマーとする第一段階、

(b) 反応生成物にピロメリット酸ジ無水物以外の酸ジ無水物と芳香族ジアミンとを添加し、160 ~ 200℃に加熱して反応させる第二段階、ここで、全酸ジ無水物と全芳香族ジアミンのモル比は1 : 1 ~ 0. 95である、

を含むピロメリット酸ジ無水物を含む四成分以上のブロック共重合ポリイミド

溶液の製造方法。

6. 前記ジアミノトルエンの代りに、3, 3' -ジアミノジフェニルスルホン、

1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン二無水物、3, 4-ジカルボキシフェニルスルホン無水物、ビス(3, 4-ジカルボキシフェニル)エーテル無水物、2, 3, 6, 7-ナフタレンテトラカルボン酸ジ無水物である請求項5記載の製造方法。

5 11. (補正後) ピロメリット酸ジ無水物を含む、ベンゾオキサゾール基とイミド基を有する重縮合物の製造法において、

(a) ピロメリット酸ジ無水物(1モル)及び、ジアミノトルエン(1.5～2モル)とを炭化水素を含む極性溶媒中で、160～200℃、酸触媒の存在下で反応させ、両末端ジアミンのオリゴマーとする第一段階、

10 (b) 反応生成物にピロメリット酸ジ無水物以外の酸ジ無水物とオルト位に水酸基とアミノ基を有する芳香族ジアミンとを添加し、160～200℃に加熱して反応させる第二段階、ここで、全酸ジ無水物と全芳香族ジアミンのモル比は1:1～0.95である、

15 を含む、四成分以上の、ベンゾオキサゾール基とイミド基を有する重縮合物の製造方法。

12. (補正後) ピロメリット酸ジ無水物を含む、ベンゾオキサゾール基とイミド基を有する重縮合物の製造方法において、

20 (a) ピロメリット酸ジ無水物以外の酸ジ無水物(2モル)及びオルト位に水酸基とアミノ基を有する芳香族ジアミン(1～1.5モル)とを炭化水素を含む極性溶媒中で、160～200℃、酸触媒の存在下で反応させ、両末端酸ジ無水物のオリゴマーとする第一段階、

25 (b) 反応生成物にピロメリット酸ジ無水物と芳香族ジアミンとを添加して、160～200℃に加熱する第二段階、ここで、ピロメリット酸ジ無水物と芳香族ジアミンのモル比は1:1.5～2であり、全芳香族テトラカルボン酸ジ無水物と全芳香族ジアミンのモル比は1:1～0.95である、

を含むピロメリット酸ジ無水物を含む、四成分以上の、ベンゾオキサゾール基とイミド基を有する重縮合物の製造方法。

13. 前記オルト位に水酸基とアミノ基を有する芳香族ジアミンが、3, 3'

ージヒドロキシベンチジン、3, 3'-ジヒドロキシ-4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、1, 4-ビス(3-ヒドロキシ-4-アミノフェニル)ベンゼン、2, 2-ビス[3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル]プロパン、ビス(3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル)スルホン、2, 4-ジアミノフェノール、
 5 2, 5-ジアミノフェノール及び2, 2-ビス[4-(3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル)]ヘキサフルオロプロパンからなる群から選択される請求11又は12いずれか記載の製造方法。

14. (補正後)(a) ピロメリット酸ジ無水物(1モル)とジアミノトルエン(1.5~2モル)との反応生成物である両末端ジアミンのオリゴマーに、ベン
 10 ゴフェノンテトラカルボン酸ジ無水物と芳香族ジアミンを、酸触媒の存在下に反応して得られる、四成分以上のブロック共重合ポリイミド、ここで、全酸ジ無水物と全芳香族ジアミンのモル比は、1:1.00~0.95である、及び

(b) 炭化水素を含む極性溶媒、

からなる、フィルム、感光性ポリイミド、絶縁ワニス、電着用ポリイミド、印
 15 刷用ワニス、封止剤、接着剤として使用するブロック共重合ポリイミド組成物。

15. (補正後)(a) ベンゾフェノンテトラカルボン酸ジ無水物(2モル)と
 ジアミノトルエン(1~1.5モル)との反応生成物である両末端酸ジ無水物の
 オリゴマーに、ピロメリット酸ジ無水物と芳香族ジアミンを、酸触媒の存在下に
 反応して得られる、四成分以上のブロック共重合ポリイミド、ここで、ピロメリ
 20 ット酸ジ無水物と芳香族ジアミンのモル比は1:1.5~2であり、全酸ジ無水物と全芳香族ジアミンのモル比は、1:1.00~0.95である、及び

(b) 炭化水素を含む極性溶媒、

からなる、フィルム、感光性ポリイミド、絶縁ワニス、電着用ポリイミド、印
 刷用ワニス、封止剤、接着剤として使用するブロック共重合ポリイミド組成物。

16. 四成分以上のブロック共重合ポリイミド溶液の製造方法において、(a)
 ピロメリット酸ジ無水物(1モル)とジアミノトルエン(1.5~2モル)とを
 炭化水素を含む極性溶媒中、160~200℃、酸触媒の存在下に反応させ、両